

## PATENT COOPERATION TREATY

PCT

## NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Assistant Commissioner for Patents  
United States Patent and Trademark  
Office  
Box PCT  
Washington, D.C.20231  
ETATS-UNIS D'AMERIQUE

in its capacity as elected Office

<b>Date of mailing (day/month/year)</b> 08 August 2000 (08.08.00)	
<b>International application No.</b> PCT/JP99/06975	<b>Applicant's or agent's file reference</b> CS-4365
<b>International filing date (day/month/year)</b> 13 December 1999 (13.12.99)	<b>Priority date (day/month/year)</b> 14 December 1998 (14.12.98)
<b>Applicant</b> CHIKAMI, Yoshihiro et al	

1. The designated Office is hereby notified of its election made:

☒ in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:

10 July 2000 (10.07.00)

☐ in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:2. The election ☒ was☐ was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

<p>The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland</p> <p>Facsimile No.: (41-22) 740.14.35</p>	<p>Authorized officer Alejandro HENNING</p> <p>Telephone No.: (41-22) 338.83.38</p>
--	---

## PATENT COOPERATION TREATY

PCT

From the INTERNATIONAL BUREAU

INFORMATION CONCERNING ELECTED  
OFFICES NOTIFIED OF THEIR ELECTION

(PCT Rule 61.3)

To:

CHISSO CORPORATION  
Legal Affair Dept.  
7-3, Marunouchi 2-chome  
Chiyoda-ku  
Tokyo 100-8333  
JAPON

チッソ株式会社  
00. 8. 17  
法務部

Date of mailing (day/month/year)

08 August 2000 (08.08.00)

Applicant's or agent's file reference

CS-4365

## IMPORTANT INFORMATION

International application No.

PCT/JP99/06975

International filing date (day/month/year)

13 December 1999 (13.12.99)

Priority date (day/month/year)

14 December 1998 (14.12.98)

Applicant

CHISSO CORPORATION et al

1. The applicant is hereby informed that the International Bureau has, according to Article 31(7), notified each of the following Offices of its election:

EP : AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE  
National : CN, JP, KR, US

2. The following Offices have waived the requirement for the notification of their election; the notification will be sent to them by the International Bureau only upon their request:

None

3. The applicant is reminded that he must enter the "national phase" before the expiration of 30 months from the priority date before each of the Offices listed above. This must be done by paying the national fee(s) and furnishing, if prescribed, a translation of the international application (Article 39(1)(a)), as well as, where applicable, by furnishing a translation of any annexes of the international preliminary examination report (Article 36(3)(b) and Rule 74.1).

Some offices have fixed time limits expiring later than the above-mentioned time limit. For detailed information about the applicable time limits and the acts to be performed upon entry into the national phase before a particular Office, see Volume II of the PCT Applicant's Guide.

The entry into the European regional phase is postponed until 31 months from the priority date for all States designated for the purposes of obtaining a European patent.

The International Bureau of WIPO  
34, chemin des Calmbettes  
1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No. (41-22) 740.14.35

Authorized officer:

Alejandro HENNING

Telephone No. (41-22) 338.83.38

PCT

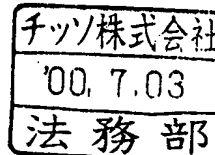
From the INTERNATIONAL BUREAU

菅原

NOTICE INFORMING THE APPLICANT OF THE  
COMMUNICATION OF THE INTERNATIONAL  
APPLICATION TO THE DESIGNATED OFFICES

(PCT Rule 47.1(c), first sentence)

To:

CHISSO CORPORATION  
Legal Affair Dept.  
7-3, Marunouchi 2-chome  
Chiyoda-ku  
Tokyo 100-8333  
JAPON

Date of mailing (day/month/year) 22 June 2000 (22.06.00)		
Applicant's or agent's file reference CS-4365		
<b>IMPORTANT NOTICE</b>		
International application No. PCT/JP99/06975	International filing date (day/month/year) 13 December 1999 (13.12.99)	Priority date (day/month/year) 14 December 1998 (14.12.98)
Applicant CHISSO CORPORATION et al		

1. Notice is hereby given that the International Bureau has communicated, as provided in Article 20, the international application to the following designated Offices on the date indicated above as the date of mailing of this Notice:  
CN,JP,KR,US

In accordance with Rule 47.1(c), third sentence, those Offices will accept the present Notice as conclusive evidence that the communication of the international application has duly taken place on the date of mailing indicated above and no copy of the international application is required to be furnished by the applicant to the designated Office(s).

2. The following designated Offices have waived the requirement for such a communication at this time:  
EP

The communication will be made to those Offices only upon their request. Furthermore, those Offices do not require the applicant to furnish a copy of the international application (Rule 49.1(a-bis)).

3. Enclosed with this Notice is a copy of the international application as published by the International Bureau on  
22 June 2000 (22.06.00) under No. WO 00/36045

**REMINDER REGARDING CHAPTER II (Article 31(2)(a) and Rule 54.2)**

If the applicant wishes to postpone entry into the national phase until 30 months (or later in some Offices) from the priority date, a demand for international preliminary examination must be filed with the competent International Preliminary Examining Authority before the expiration of 19 months from the priority date.

It is the applicant's sole responsibility to monitor the 19-month time limit.

Note that only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination.

**REMINDER REGARDING ENTRY INTO THE NATIONAL PHASE (Article 22 or 39(1))**

If the applicant wishes to proceed with the international application in the national phase, he must, within 20 months or 30 months, or later in some Offices, perform the acts referred to therein before each designated or elected Office.

For further important information on the time limits and acts to be performed for entering the national phase, see the Annex to Form PCT/IB/301 (Notification of Receipt of Record Copy) and Volume II of the PCT Applicant's Guide.

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland	Authorized officer J. Zahra
Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Telephone No. (41-22) 338.83.38

## PATENT COOPERATION TREATY

担当 菅原

PCT

NOTIFICATION CONCERNING  
SUBMISSION OR TRANSMITTAL  
OF PRIORITY DOCUMENT

(PCT Administrative Instructions, Section 411)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

CHISSO CORPORATION  
Legal Affair Dept.  
7-3, Marunouchi 2-chome  
Chiyoda-ku  
Tokyo 100-8333  
JAPONチッソ株式会社  
00 2.28  
法務部

Date of mailing (day/month/year) 18 February 2000 (18.02.00)	<b>IMPORTANT NOTIFICATION</b>
Applicant's or agent's file reference CS-4365	
International application No. PCT/JP99/06975	
International publication date (day/month/year) Not yet published	
Applicant CHISSO CORPORATION et al	International filing date (day/month/year) 13 December 1999 (13.12.99) Priority date (day/month/year) 14 December 1998 (14.12.98)

- The applicant is hereby notified of the date of receipt (except where the letters "NR" appear in the right-hand column) by the International Bureau of the priority document(s) relating to the earlier application(s) indicated below. Unless otherwise indicated by an asterisk appearing next to a date of receipt, or by the letters "NR", in the right-hand column, the priority document concerned was submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b).
- This updates and replaces any previously issued notification concerning submission or transmittal of priority documents.
- An asterisk(\*) appearing next to a date of receipt, in the right-hand column, denotes a priority document submitted or transmitted to the International Bureau but not in compliance with Rule 17.1(a) or (b). In such a case, **the attention of the applicant is directed** to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.
- The letters "NR" appearing in the right-hand column denote a priority document which was not received by the International Bureau or which the applicant did not request the receiving Office to prepare and transmit to the International Bureau, as provided by Rule 17.1(a) or (b), respectively. In such a case, **the attention of the applicant is directed** to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

<u>Priority date</u>	<u>Priority application No.</u>	<u>Country or regional Office or PCT receiving Office</u>	<u>Date of receipt of priority document</u>
14 Dece 1998 (14.12.98)	10/354586	JP	04 Febr 2000 (04.02.00)

The International Bureau of WIPO  
34, chemin des Colombettes  
1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No. (41-22) 740.14.35

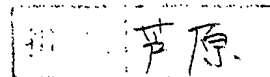
Authorized officer

Carlos Naranjo

bn

Telephone No. (41-22) 338.83.38

## PATENT COOPERATION TREATY



PCT

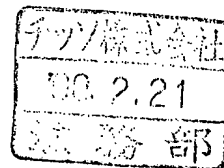
NOTIFICATION OF RECEIPT OF  
RECORD COPY

(PCT Rule 24.2(a))

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

CHISSO CORPORATION  
Legal Affair Dept.  
7-3, Marunouchi 2-chome  
Chiyoda-ku  
Tokyo 100-8333  
JAPON



Date of mailing (day/month/year) 17 January 2000 (17.01.00)	IMPORTANT NOTIFICATION
Applicant's or agent's file reference CS-4365	International application No. PCT/JP99/06975

The applicant is hereby notified that the International Bureau has received the record copy of the international application as detailed below.

Name(s) of the applicant(s) and State(s) for which they are applicants:

CHISSO CORPORATION (for all designated States except US)  
CHIKAMI, Yoshihiro et al (for US)

International filing date : 13 December 1999 (13.12.99)

Priority date(s) claimed : 14 December 1998 (14.12.98)

Date of receipt of the record copy  
by the International Bureau : 05 January 2000 (05.01.00)

List of designated Offices :

EP : AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE  
National : CN, JP, KR, US

## ATTENTION

The applicant should carefully check the data appearing in this Notification. In case of any discrepancy between these data and the indications in the international application, the applicant should immediately inform the International Bureau.

In addition, the applicant's attention is drawn to the information contained in the Annex, relating to:

- ☒ time limits for entry into the national phase
- ☒ confirmation of precautionary designations
- ☒ requirements regarding priority documents

A copy of this Notification is being sent to the receiving Office and to the International Searching Authority.

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland	Authorized officer:  Susumu Kubo
Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Telephone No. (41-22) 338.83.38

419M  
09/857963  
**Translation**  
5635

113 1700  
**PATENT COOPERATION TREATY**

**PCT**

**INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT**

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference CS-4365	<b>FOR FURTHER ACTION</b> See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/JP99/06975	International filing date (day/month/year) 13 December 1999 (13.12.99)	Priority date (day/month/year) 14 December 1998 (14.12.98)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC C09K 3/00, C05G 5/00, 3/00, A01N 25/26, 25/18		
Applicant CHISSO CORPORATION		

1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.

2. This REPORT consists of a total of 3 sheets, including this cover sheet.

☐ This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).

These annexes consist of a total of \_\_\_\_\_ sheets.

3. This report contains indications relating to the following items:

- I ☒ Basis of the report
- II ☐ Priority
- III ☐ Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability
- IV ☐ Lack of unity of invention
- V ☒ Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement
- VI ☐ Certain documents cited
- VII ☐ Certain defects in the international application
- VIII ☐ Certain observations on the international application

RECEIVED  
NOV 07 2001  
TC 1700

Date of submission of the demand 10 July 2000 (10.07.00)	Date of completion of this report 22 November 2000 (22.11.2000)
Name and mailing address of the IPEA/JP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP99/06975

## I. Basis of the report

## 1. With regard to the elements of the international application:\*

- ☒ the international application as originally filed
- ☐ the description:  
pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☐ the claims:  
pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, as amended (together with any statement under Article 19  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☐ the drawings:  
pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☐ the sequence listing part of the description:  
pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_

## 2. With regard to the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.

These elements were available or furnished to this Authority in the following language \_\_\_\_\_ which is:

- ☐ the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).
- ☐ the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
- ☐ the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

## 3. With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

- ☐ contained in the international application in written form.
- ☐ filed together with the international application in computer readable form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in written form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.
- ☐ The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.
- ☐ The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

4. ☐ The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages \_\_\_\_\_
- ☐ the claims, Nos. \_\_\_\_\_
- ☐ the drawings, sheets/fig \_\_\_\_\_

5. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).\*\*

\* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

\*\* Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.

# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP99/06975

## V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

### 1. Statement

Novelty (N)	Claims	6-7,12-14,16	YES
	Claims	1-5,8-11,15	NO
Inventive step (IS)	Claims		YES
	Claims	1-16	NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-16	YES
	Claims		NO

### 2. Citations and explanations

Document 1: JP, 10-118557, A (Chisso Corp.) 12 May 1998 (12.05.98) Claims; Par. Nos. 0002, 0014-0016 (Family: none)

Document 2: JP, 9-25189, A (Mitsui Toatsu Chemicals Inc.) 28 January 1997 (28.01.97) Claims; Par. Nos. 0010, 0016-0020 (Family: none)

Documents 1 and 2 were cited in the international search report.

Claims 1-5, 8-11, and 15

Based on the description in document 2, the inventions set forth in Claims 1-5, 8-11, and 15 do not appear to be novel.

Document 2 describes a manufacturing process for granulated fertilizer in which a thermoplastic resin such as polyethylene and the like is adhered to granulated fertilizer, the granules are placed in the presence of a temperature range above the melting point of the thermoplastic resin, and then cooled. Because no volatile substances such as solvents are used in this process, the concentration of volatile substances in the coated granulated fertilizer thus obtained is 1 ppm or less.

Claims 1-16

Based on the descriptions in documents 1 and 2, the inventions set forth in Claims 1-16 do not appear to involve an inventive step. Document 1 describes a process for spraying a thermoplastic resin that has been dissolved in a solvent onto the surface of granules of fertilizer, for example, and thoroughly drying the solvent by spraying it with an inert gas.

Therefore, because it is publicly known that reducing the solvent in the obtained granules as much as possible is preferable, and because document 2 describes granules coated with a resin in which a solvent is not used, persons skilled in the art can easily conceive of thoroughly evaporating the solvent to reduce it as much as possible such that a concentration of 1 ppm or less of volatile substance is obtained in a coated biologically active granular substance.

Persons skilled in the art can also utilize various types of biologically active granular substances other than fertilizer as needed.

Thus, the advantages of the inventions in this application are merely within the scope of those predicted by persons skilled in the art.

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP99/06975

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> C09K3/00, C05G5/00, C05G3/00, A01N25/26, A01N25/18

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> C09K3/00, C05G5/00, C05G3/00, A01N25/26, A01N25/18

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)  
WPI/L (QUESTEL)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP, 10-118557, A (CHISSO CORPORATION), 12 May, 1998 (12.05.98), Claims; Par. Nos. 0002, 0014 to 0016 (Family: none)	1-16
X	JP, 9-25189, A (Mitsui Toatsu Chemicals Inc.), 28 January, 1997 (28.01.97), Claims; Par. Nos. 0010, 0020 (Family: none)	1-16

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:  
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance  
"E" earlier document but published on or after the international filing date  
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)  
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means  
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention  
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone  
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art  
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
07 March, 2000 (07.03.00)

Date of mailing of the international search report  
14 March, 2000 (14.03.00)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP99/06975

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> C09K3/00, C05G5/00, C05G3/00, A01N25/26, A01N25/18

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> C09K3/00, C05G5/00, C05G3/00, A01N25/26, A01N25/18

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

WPI/L (QUESTEL)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP, 10-118557, A (CHISSO CORPORATION), 12 May, 1998 (12.05.98), Claims; Par. Nos. 0002, 0014 to 0016 (Family: none)	1-16
X	JP, 9-25189, A (Mitsui Toatsu Chemicals Inc.), 28 January, 1997 (28.01.97), Claims; Par. Nos. 0010, 0020 (Family: none)	1-16

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
07 March, 2000 (07.03.00)

Date of mailing of the international search report  
14 March, 2000 (14.03.00)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## 国際調査報告

国際出願番号 PCT/J P 99/06975

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))  
 Int. Cl<sup>7</sup>. C09K3/00, C05G5/00, C05G3/00, A01N25/26, A01N25/18

B. 調査を行った分野  
 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))  
 Int. Cl<sup>7</sup>. C09K3/00, C05G5/00, C05G3/00, A01N25/26, A01N25/18

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)  
 WPI/L (QUESTEL)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP, 10-118557, A (チッソ株式会社) 12.5月.1998 (12.05.98) 特許請求の範囲、段落0002、0014~0016 (ファミリーなし)	1-16
X	JP, 9-25189, A (三井東圧株式会社) 28.1月.1997 (28.01.97) 特許請求の範囲、段落0010、0020 (ファミリーなし)	1-16

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献  
 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
 「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日 07.03.00

国際調査報告の発送日

14.08.00

国際調査機関の名称及びあて先  
 日本国特許庁 (ISA/J P)  
 郵便番号100-8915  
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)  
 藤原 浩子

4V 9155

電話番号 03-3581-1101 内線 3483

EP

PCT

国際調査報告

(法8条、法施行規則第40、41条)  
〔PCT18条、PCT規則43、44〕

出願人又は代理人 の書類記号 CS-4365	今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/220) 及び下記5を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JP99/06975	国際出願日 (日.月.年) 13.12.99	優先日 (日.月.年) 14.12.98
出願人(氏名又は名称) チッソ株式会社		

国際調査機関が作成したこの国際調査報告を法施行規則第41条(PCT18条)の規定に従い出願人に送付する。  
この写しは国際事務局にも送付される。

この国際調査報告は、全部で 2 ページである。

☐ この調査報告に引用された先行技術文献の写しも添付されている。

#### 1. 国際調査報告の基礎

a. 言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。

☐ この国際調査機関に提出された国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。

b. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際調査を行った。

☐ この国際出願に含まれる書面による配列表

☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出された書面による配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった。

☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記載した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

2. ☐ 請求の範囲の一部の調査ができない(第I欄参照)。

3. ☐ 発明の単一性が欠如している(第II欄参照)。

4. 発明の名称は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 次に示すように国際調査機関が作成した。

5. 要約は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 第III欄に示されているように、法施行規則第47条(PCT規則38.2(b))の規定により国際調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から1カ月以内にこの国際調査機関に意見を提出することができる。

6. 要約書とともに公表される図は、

第 \_\_\_\_\_ 図とする。 ☐ 出願人が示したとおりである。

☒ なし

☐ 出願人は図を示さなかった。

☐ 本図は発明の特徴を一層よく表している。

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))  
Int. Cl<sup>7</sup>. C09K3/00, C05G5/00, C05G3/00, A01N25/26, A01N25/18

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup>. C09K3/00, C05G5/00, C05G3/00, A01N25/26, A01N25/18

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

WPI/L (QUESTEL)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP, 10-118557, A (チッソ株式会社) 12.5月.1998 (12.05.98) 特許請求の範囲、段落0002、0014~0016 (ファミリーなし)	1-16
X	JP, 9-25189, A (三井東圧株式会社) 28.1月.1997 (28.01.97) 特許請求の範囲、段落0010、0020 (ファミリーなし)	1-16

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

07.03.00

国際調査報告の発送日

14.03.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

藤原 浩子



4 V


9155

電話番号 03-3581-1101 内線 3483

特許協力条約に基づく国際出願願書

CS-4365

原本（出願用） - 印刷日時 1999年12月09日 (09.12.1999) 木曜日 11時12分48秒

0	受理官庁記入欄 国際出願番号.	
0-1		
0-2	国際出願日	
0-3	(受付印)	
0-4	様式-PCT/RO/101 この特許協力条約に基づく国際出願願書は、 右記によって作成された。	PCT-EASY Version 2.90 (updated 15.10.1999)
0-4-1		
0-5	申立て 出願人は、この国際出願が特許協力条約に従って処理されることを請求する。	
0-6	出願人によって指定された受理官庁	日本国特許庁 (RO/JP)
0-7	出願人又は代理人の書類記号	CS-4365
I	発明の名称	被覆生物活性粒状物
II	出願人	
II-1	この欄に記載した者は	出願人である (applicant only)
II-2	右の指定国についての出願人である。	米国を除くすべての指定国 (all designated States except US)
II-4ja	名称	チッソ株式会社
II-4en	Name	CHISSO CORPORATION
II-5ja	あて名:	530-0005 日本国 大阪府 大阪市 北区中之島三丁目6番32号
II-5en	Address:	6-32, Nakanoshima 3-chome, Kita-ku, Osaka-shi, Osaka 530-0005 Japan
II-6	国籍 (国名)	日本国 JP
II-7	住所 (国名)	日本国 JP
II-8	電話番号	03-3284-8541
II-9	ファクシミリ番号	03-3284-8776
III-1	その他の出願人又は発明者	
III-1-1	この欄に記載した者は	出願人及び発明者である (applicant and inventor)
III-1-2	右の指定国についての出願人である。	米国のみ (US only)
III-1-4ja	氏名 (姓名)	千頭 世始裕
III-1-4en	Name (LAST, First)	CHIKAMI, Yoshihiro
III-1-5ja	あて名:	867-0062 日本国 熊本県 水俣市 築地5番316号
III-1-5en	Address:	5-316, Tsukiji Minamata-shi, Kumamoto 867-0062 Japan
III-1-6	国籍 (国名)	日本国 JP
III-1-7	住所 (国名)	日本国 JP

## 特許協力条約に基づく国際出願願書

CS-4365

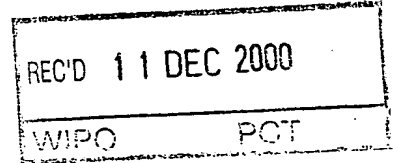
原本（出願用） - 印刷日時 1999年12月09日 (09.12.1999) 木曜日 11時12分48秒

III-2 III-2-1	その他の出願人又は発明者 この欄に記載した者は	出願人及び発明者である (applicant and inventor)
III-2-2	右の指定国についての出願人である。	米国のみ (US only)
III-2-4ja III-2-4en III-2-5ja	氏名 (姓名) Name (LAST, First) あて名:	木元 成年 KIMOTO, Narutoshi 867-0066 日本国 熊本県 水俣市 古賀町2丁目9番1号
III-2-5en	Address:	9-1, Koga-machi 2-chome, Minamata-shi, Kumamoto 867-0066 Japan
III-2-6	国籍 (国名)	日本国 JP
III-2-7	住所 (国名)	日本国 JP
III-3 III-3-1	その他の出願人又は発明者 この欄に記載した者は	出願人及び発明者である (applicant and inventor)
III-3-2	右の指定国についての出願人である。	米国のみ (US only)
III-3-4ja III-3-4en III-3-5ja	氏名 (姓名) Name (LAST, First) あて名:	高橋 厚志 TAKAHASHI, Atsushi 867-0062 日本国 熊本県 水俣市 築地6-1-137
III-3-5en	Address:	6-1-137, Tsukiji Minamata-shi, Kumamoto 867-0062 Japan
III-3-6	国籍 (国名)	日本国 JP
III-3-7	住所 (国名)	日本国 JP
IV-1 IV-1-1ja IV-1-1en IV-1-2ja	代理人又は共通の代表者、通知のあて名 代理人又は共通の代表者が選任されておらず、下記枠内に特に通知が送付されるあて名を記載している 名称 Name あて名:	通知のあて名 (address for correspondence)
IV-1-2en	Address:	チッソ株式会社 CHISSO CORPORATION 100-8333 日本国 東京都 千代田区 丸の内2丁目7番3号 法務部 Legal Affairs Department 7-3, Marunouchi 2-chome Chiyoda-ku, Tokyo 100-8333 Japan
IV-1-3	電話番号	03-3284-8541
IV-1-4	ファクシミリ番号	03-3284-8776
V V-1	国の指定 広域特許 (他の種類の保護又は取扱いを求める場合には括弧内に記載する。)	EP: AT BE CH&LI CY DE DK ES FI FR GB GR IE IT LU MC NL PT SE 及びヨーロッパ特許条約と特許協力条約の締約国 である他の国

P C T

## 国際予備審査報告

(法第12条、法施行規則第56条)  
〔PCT36条及びPCT規則70〕



出願人又は代理人 の書類記号 CS-4365	今後の手続きについては、国際予備審査報告の送付通知（様式PCT/ IPEA/416）を参照すること。	
国際出願番号 PCT/J P 99/06975	国際出願日 (日.月.年) 13.12.99	優先日 (日.月.年) 14.12.98
国際特許分類 (IPC) Int. Cl <sup>7</sup> . C09K3/00, C05G5/00, C05G3/00, A01N25/26, A01N25/18		
出願人 (氏名又は名称) チッソ株式会社		

1. 国際予備審査機関が作成したこの国際予備審査報告を法施行規則第57条 (PCT36条) の規定に従い送付する。
2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で <u>3</u> ページからなる。  <input type="checkbox"/> この国際予備審査報告には、附属書類、つまり補正されて、この報告の基礎とされた及び/又はこの国際予備審査機関に対してした訂正を含む明細書、請求の範囲及び/又は図面も添付されている。 (PCT規則70.16及びPCT実施細則第607号参照) この附属書類は、全部で <u>                    </u> ページである。
3. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。  I <input checked="" type="checkbox"/> 国際予備審査報告の基礎 II <input type="checkbox"/> 優先権 III <input type="checkbox"/> 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成 IV <input type="checkbox"/> 発明の単一性の欠如 V <input checked="" type="checkbox"/> PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明 VI <input type="checkbox"/> ある種の引用文献 VII <input type="checkbox"/> 国際出願の不備 VIII <input type="checkbox"/> 国際出願に対する意見

国際予備審査の請求書を受理した日 10.07.00	国際予備審査報告を作成した日 22.11.00		
名称及びあて先 日本国特許庁 (IPEA/J P) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員)	4V	9155
	藤原 浩子 電話番号 03-3581-1101 内線 3483		

## I. 国際予備審査報告の基礎

1. この国際予備審査報告は下記の出願書類に基づいて作成された。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に  
 応答するために提出された差し替え用紙は、この報告書において「出願時」とし、本報告書には添付しない。  
 PCT規則70.16, 70.17)

☒ 出願時の国際出願書類

- ☐ 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、 出願時に提出されたもの  
 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの
- ☐ 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 出願時に提出されたもの  
 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 PCT19条の規定に基づき補正されたもの  
 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの
- ☐ 図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 出願時に提出されたもの  
 図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの
- ☐ 明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 出願時に提出されたもの  
 明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
 明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの

2. 上記の出願書類の言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願の言語である。

上記の書類は、下記の言語である \_\_\_\_\_ 語である。

- ☐ 国際調査のために提出されたPCT規則23.1(b)にいう翻訳文の言語  
☐ PCT規則48.3(b)にいう国際公開の言語  
☐ 国際予備審査のために提出されたPCT規則55.2または55.3にいう翻訳文の言語

3. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際予備審査報告を行った。

- ☐ この国際出願に含まれる書面による配列表  
☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された書面による配列表  
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった  
☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記録した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

4. 補正により、下記の書類が削除された。

- ☐ 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ  
☐ 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項  
☐ 図面 図面の第 \_\_\_\_\_ ページ/図

5. ☐ この国際予備審査報告は、補充欄に示したように、補正が出願時における開示の範囲を越えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c) この補正を含む差し替え用紙は上記1.における判断の際に考慮しなければならず、本報告に添付する。)

## V. 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条(PCT35条(2))に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

## 1. 見解

新規性(N)	請求の範囲	6-7, 12-14, 16	有
	請求の範囲	1-5, 8-11, 15	無
進歩性(IS)	請求の範囲		有
	請求の範囲	1-16	無
産業上の利用可能性(IA)	請求の範囲	1-16	有
	請求の範囲		無

## 2. 文献及び説明(PCT規則70.7)

文献1: JP, 10-118557, A (チッソ株式会社) 12.5月.1998(12.05.98)  
特許請求の範囲、段落0002、0014~0016 (ファミリーなし)

文献2: JP, 9-25189, A (三井東圧株式会社) 28.1月.1997 (28.01.97)  
特許請求の範囲、段落0010、00160020 (ファミリーなし)

(文献1~2は、国際調査報告で引用された文献である。)

・請求の範囲1-5, 8-11, 15

請求の範囲1-5, 8-11, 15に記載された発明は、文献2から新規性を有さない。

文献2には、ポリエチレン等の熱可塑性樹脂を粒状肥料に付着させた後、該熱可塑性樹脂の融点以上の温度帯域に存在せしめ、次いで冷却する粒状肥料の製造方法が記載されている。かかる方法では溶剤などの揮発性物質を用いていないので、得られる被覆粒状肥料中の揮発性物質の濃度は1ppm以下であると認められる。

・請求の範囲1-16

請求の範囲1-16に記載された発明は、文献1~2から進歩性を有さない。文献1には、溶剤に溶解させた熱可塑性樹脂を肥料などの粒体の表面に噴霧する方法において、不活性気体を噴出させることによって溶剤の乾燥を十分にすることが記載されている。

したがって、得られる粒状物中の溶剤をなるべく低くすることは公知であり、また、文献2には、溶剤を用いない樹脂被覆粒状物も記載されていることから、本願発明において、溶剤をよく蒸発させて被覆生物活性粒状物中の揮発性物質の濃度を1ppm以下のように、なるべく低くすることは、当業者が容易に想到し得たものといえる。肥料以外の各種の生物活性粒状物に適用することも、当業者が適宜なし得る時候である。

そして、本願発明の効果も、当業者の予測の範囲内のものにすぎない。

PCT

世界知的所有権機関  
国際事務局

特許協力条約に基づいて公開された国際出願



<b>(51) 国際特許分類7</b> C09K 3/00, C05G 5/00, 3/00, A01N 25/26, 25/18	<b>A1</b>	<b>(11) 国際公開番号</b> <b>WO00/36045</b>  <b>(43) 国際公開日</b> 2000年6月22日(22.06.00)
<b>(21) 国際出願番号</b> PCT/JP99/06975 <b>(22) 国際出願日</b> 1999年12月13日(13.12.99) <b>(30) 優先権データ</b> 特願平10/354586 1998年12月14日(14.12.98) JP  <b>(71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について)</b> チッソ株式会社(CHISSO CORPORATION)[JP/JP] 〒530-0005 大阪府大阪市北区中之島三丁目6番32号 Osaka, (JP) <b>(72) 発明者 ; および</b> <b>(75) 発明者 / 出願人 (米国についてのみ)</b> 千頭世始裕(CHIKAMI, Yoshihiro)[JP/JP] 〒867-0062 熊本県水俣市築地5番316号 Kumamoto, (JP) 木元成年(KIMOTO, Narutoshi)[JP/JP] 〒867-0066 熊本県水俣市古賀町2丁目9番1号 Kumamoto, (JP) 高橋厚志(TAKAHASHI, Atsushi)[JP/JP] 〒867-0062 熊本県水俣市築地6-1-137 Kumamoto, (JP)		<b>(81) 指定国</b> CN, JP, KR, US, 欧州特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE)  <b>添付公開書類</b> 国際調査報告書
<b>(54) Title: COATED BIOLOGICALLY ACTIVE GRAINS</b>  <b>(54) 発明の名称</b> 被覆生物活性粒状物  <b>(57) Abstract</b> Coated biologically active grains wherein grains containing a biologically active substance are surface-coated and the concentration of a volatile substance contained in the grains is 500 ppm or less based on the grains.		

(57)要約

生物活性物質を含有する粒子の表面を、被膜で被覆した被覆生物活性粒状物であって、該粒状物に含まれる揮発物質の該粒状物に対する濃度が500ppm以下である被覆生物活性粒状物。

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第一頁に掲載されたPCT加盟国を同定するために使用されるコード(参考情報)

AE	アラブ首長国連邦	DM	ドミニカ	KZ	カザフスタン	RU	ロシア
AL	アルバニア	DE	ドイツ	LC	セントルシア	SE	スウェーデン
AM	アルメニア	ES	スペイン	LI	リヒテンシュタイン	SG	シンガポール
AT	オーストリア	FI	フィンランド	LK	スリランカ	SI	スロベニア
AU	オーストラリア	FR	フランス	LR	リベリア	SK	スロヴァキア
AZ	アゼルバイジャン	GB	ガボン	LT	リトアニア	SL	シエラ・レオネ
BA	ボスニア・ヘルツェゴビナ	GR	ギリシャ	LU	ルクセンブルグ	SN	セネガル
BB	バルバドス	DE	ドイツ	LV	ラトヴィア	SZ	スワジランド
BE	ベルギー	GH	グナ	MA	モロッコ	TD	チャド
BF	ブルキナ・ファソ	GM	ガンビア	MC	モナコ	TG	トーゴ
BG	ブルガリア	GN	ギニア	MD	モルドヴァ	TJ	タジキスタン
BR	ブラジル	GW	ギニア・ビサウ	MG	マダガスカル	TZ	タンザニア
BS	バハマ	HR	クロアチア	MK	マケドニア	UA	ウクライナ
CA	カナダ	HU	ハンガリー		共和国	TM	トルクメニスタン
CC	中央アフリカ	ID	インドネシア	ML	マリ	TR	トルコ
CF	中央アフリカ	IE	アイルランド	MR	モリタニア	TT	トリニダード・トバゴ
CG	コンゴ	IS	アイスランド	MW	マラウイ	TV	ツバル
CH	スイス	IT	イタリア	MX	メキシコ	UG	ウガンダ
CI	コートジボアール	JP	日本	NE	ニジェール	US	米国
CM	カメルーン	KE	ケニア	NL	オランダ	UZ	ウズベキスタン
CN	中国	KG	キルギスタン	NZ	ニュージーランド	VC	グアドループ
CO	コロンビア	KR	韓国	PT	ポルトガル	VE	ベネズエラ
CR	コスタ・リカ			RO	ルーマニア		
CY	キプロス						
CZ	チェコ						
DE	ドイツ						
DK	デンマーク						

## 明 細 書

## 被覆生物活性粒状物

## 発明の分野

本発明は生物活性物質粒子の表面を、被膜で被覆した被覆生物活性粒状物に関する。更に詳しくは、該被覆生物活性粒状物に含まれる揮発物質の、該粒状物に対する濃度が500ppm以下である被覆生物活性粒状物に関する。

## 発明の背景

就農人口が減少し、且つ就農者が高齢化している近年の農業環境においては、肥料や農薬をはじめとする生物活性物質の施肥や散布などの作業の省力化と効率化が求められ、樹脂や硫黄で肥料粒子を被覆した被覆肥料や、樹脂で農薬粒子を被覆した被覆農薬が開発され、その技術内容は特許などを通じて既に公開されている。

被覆肥料としては、例えば特開昭63-162593号公報には、作物の吸収にあわせて肥料成分を適期に供給することができる被覆粒状尿素硝酸加里肥料が開示され、特開平4-202079号公報には、溶出開始時期が調節できる重層被覆粒状肥料が開示されている。

一方、被覆農薬としては、例えば特公昭64-5002号公報には、農薬成分の放出を徐放化した被覆粒状農薬が開示され、特開平6-9303号公報には、高吸水膨潤性物質層とオレフィン系重合体層からなる多層被膜で農薬粒剤を被覆した被覆農薬粒剤が開示されている。

これらの被覆肥料、被覆農薬は被覆された肥料や農薬に代表される生物活性物質の放出を徐放化するものであり、施肥や農薬散布などの農作業の省力化に有効な資材である。

特に、施用後一定期間肥料の放出が抑制された放出抑制期間（以

下「d 1」と記述する）と、一定期間経過後放出が持続する放出期間（以下「d 2」と記述する）とからなる時限放出型の徐放機能を有する被覆肥料は、その徐放機能により、多量の該肥料を播種若しくは本圃への苗の移植と同時に施用することを可能とし、施肥の省力化を一層向上させた。

しかしながら、これら被覆肥料や被覆農薬に代表される被覆生物活性粒状物の、各活性物質の放出制御機能は極めて有効なものであるが、製造直後の放出機能（放出期間の長さ、放出速度など）と、長期保存後の放出機能との間に違いが生じる場合があった。つまり保存後に放出機能の経時変化が生じる場合があった。このような経時変化は保管条件の影響を受け、どの程度変化するのか予測することは困難であった。

#### 発明の要約

本発明者らは、保存した後に放出機能の経時変化が生じない被覆生物活性粒状物を開発すべく鋭意研究を行った。

その結果、1種以上の生物活性物質を含有する粒子の表面を、樹脂を含む被膜で被覆した被覆生物活性粒状物であって、樹脂重合時或いは被膜形成時に使用した溶剤、水、界面活性剤、未反応モノマー、プレポリマーなどの揮発物質の、該粒状物に対する濃度が500ppm以下である被覆生物活性粒状物であれば、保存している間に発生する放出機能の経時変化が極めて少ないことを見出し、この知見に基づき本発明を完成させた。

従って、本発明の目的とするところは、保存している間に発生する放出機能の経時変化が極めて少ない被覆生物活性粒状物を提供することにある。

上記目的を達成するために本発明は、

(1) 生物活性物質を含有する粒子の表面を、被膜で被覆した被覆

生物活性粒状物であって、該粒状物に含まれる揮発物質の該粒状物に対する濃度が500ppm以下である被覆生物活性粒状物、

(2) 揮発物質の該粒状物に対する濃度が100ppm以下である前記第1項に記載の被覆生物活性粒状物、

(3) 揮発物質の該粒状物に対する濃度が10ppm以下である前記第1項に記載の被覆生物活性粒状物、

(4) 揮発物質の該粒状物に対する濃度が1ppm以下である前記第1項に記載の被覆生物活性粒状物、

(5) 被膜が樹脂を含有する被膜である前記第1～4項の何れか一項に記載の被覆生物活性粒状物、

(6) 被膜が樹脂とフィラーとを含有する被膜である前記第1～4項の何れか一項に記載の被覆生物活性粒状物、

(7) フィラーが被膜内に均一に分散されている前記第6項に記載の被覆生物活性粒状物、

(8) 樹脂が熱可塑性樹脂である前記第5～7項の何れか1項に記載の被覆生物活性粒状物、

(9) 熱可塑性樹脂がオレフィン重合体、およびオレフィン共重合体から選ばれた1種以上である前記第8項に記載の被覆生物活性粒状物、

(10) 熱可塑性樹脂がポリエチレン、ポリプロピレン、エチレン-プロピレン共重合体、エチレン-酸化炭素共重合体、エチレン-ヘキセン共重合体、エチレン-ブテン共重合体、およびプロピレン-ブテン共重合体から選ばれた1種以上である前記第8項に記載の被覆生物活性粒状物、

(11) 揮発物質が溶剤である前記第1～10項の何れか1項に記載の被覆生物活性粒状物、

(12) 溶剤が炭素系有機溶剤および塩素系有機溶剤から選ばれた

1 種以上である前記第 1 1 項に記載の被覆生物活性粒状物、

(1 3) 溶剤がトルエン、キシレン、テトラクロロエチレン、およびトリクロロエチレンから選ばれた 1 種以上である前記第 1 1 項に記載の被覆生物活性粒状物、

(1 4) 被覆生物活性粒状物が、溶剤に樹脂を溶解させた樹脂溶液を、生物活性物質を含有する粒子の表面に付着させるとともに、該樹脂溶液から溶剤を蒸発させることによって得られたものである前記第 1 ～ 1 3 項の何れか 1 項に記載の被覆生物活性粒状物、

(1 5) 生物活性物質が肥料である前記第 1 ～ 1 4 項の何れか 1 項に記載の被覆生物活性粒状物、並びに

(1 6) 生物活性物質が農薬である前記第 1 ～ 1 4 項の何れか 1 項に記載の被覆生物活性粒状物を提供するものである。

#### 図面の簡単な説明

図 1 は、本発明の被覆生物活性粒状物を製造するための噴流層被覆装置の断面図である。

図 2 は、本発明の被覆生物活性粒状物を製造するための脱気処理装置の断面図である。

#### 発明の開示

本発明で用いる生物活性物質とは、農作物、有用植物、農産物などの植物体の育成、保護の目的で用いられるものであり、使用目的に応じて増収、農作物の高品質化、病害防除、害虫防除、有害動物防除、雑草防除、更には、農作物の生育促進、生育抑制、矮化などの効果をもたらすものであって、具体的には肥料、農薬、微生物等を挙げることができる。特に被覆生物活性粒状物に用いる場合、生物活性物質が肥料または農薬であると、その使用目的に対して比較的高い効果が得られる。

本発明においては、前記生物活性物質から選ばれた 1 種を使用し

てもよく、2種以上を使用しても良い。

肥料としては、窒素質肥料、燐酸質肥料、加里質肥料のほか、植物必須要素のカルシウム、マグネシウム、硫黄、鉄、微量元素やケイ素等を含有する肥料を挙げることができる。

具体的には、窒素質肥料として硫酸アンモニア、尿素、硝酸アンモニアのほか、イソブチルアルデヒド縮合尿素、アセトアルデヒド縮合尿素等が挙げられ、燐酸質肥料としては過燐酸石灰、熔成リン肥、焼成リン肥等が挙げられ、加里質肥料としては硫酸加里、塩化加里、けい酸加里肥料等が挙げられ、その形態としては特に限定はない。また、肥料の三要素の合計分量が30%以上の高度化成肥料や配合肥料、更には、有機質肥料でもよい。また、硝酸化成抑制材や農薬を添加した肥料でもよい。

農薬としては、病害防除剤、害虫防除剤、有害動物防除剤、雑草防除剤、植物生長調節剤を挙げることができ、これらであればその種類に制限なく使用することができる。

病害防除剤とは、農作物等を病原微生物の有害作用から保護するために用いられる薬剤であり、主として殺菌剤が挙げられる。害虫防除剤とは、農作物等の害虫を防除する薬剤であり、主として殺虫剤が挙げられる。有害動物防除剤とは、農作物等を加害する植物寄生性ダニ、植物寄生性線虫、野そ、鳥、その他の有害動物を防除するために用いる薬剤である。雑草防除剤とは農作物や樹木等に有害となる草木植物の防除に用いられる薬剤であり、除草剤とも呼ばれる。植物生長調節剤とは、植物の生理機能の増進あるいは抑制を目的に用いられる薬剤である。

本発明において使用する農薬は、常温で固体の粉状であることが望ましいが常温で液体であっても良い。また、本発明においては、農薬が水溶性であっても、水難溶性であっても、水不溶性のもので

あっても用いることができ特に限定されるものではない。

本発明に利用できる農薬として、その具体例を下記に挙げるが、これらはあくまでも例示であり、これらに限定されるものではない。また、農薬は1種であっても、2種以上の複合成分からなるものであっても良い。

例えば、1-(6-クロロ-3-ピリジルメチル)-N-ニトロイミダゾリジン-2-イリデンアミン、O,O-ジエチル-S-2-(エチルチオ)エチルホスホロジチオエート、1,3-ビス(カルバモイルチオ)-2-(N,N-ジメチルアミノ)プロパン塩酸塩、2,3-ジヒドロ-2,2-ジメチル-7-ベンゾ[b]フランニル=N-ジブチルアミノチオ-N-メチルカルバマート、(2-イソプロピル-4-メチルピリミジル-6)-ジエチルチオホスフェート、5-ジメチルアミノ-1,2,3-トリチアンシュウ酸塩、O,O-ジプロピル-O-4-メチルチオフェニルホスフェート、エチル=N-[2,3-ジヒドロ-2,2-ジメチルベンゾフラン-7-イルオキシカルボニル(メチル)アミノチオ]-N-イソプロピル-β-アラニナート、1-ナフチル-N-メチルカーバメート、2-イソプロポキシフェニル-N-メチルカーバメート、ジイソプロピル-1,3-ジチオラン-2-イリデン-マロネート、5-メチル-1,2,4-トリアゾロ[3,4-b]ベンゾチアゾール、1,2,5,6-テトラヒドロピロロ[3,2,1-ij]キノリン-4-オン、3-アリルオキシ-1,2-ベンゾイソチアゾール-1,1-ジオキシド、2,4-ジクロロフェノキシ酢酸のナトリウム塩、ジメチルアミン塩またはエチルエステル。2-メチル-4-クロロフェノキシ酢酸のナトリウム塩またはエチル、ブチルエステル。2-メチル-4-クロロフェノキシ酪酸のナトリウム塩またはエチルエステル。α-(2-ナフトキシ)プロピオンアニリ

ド、S-1-メチル-1-フェニルエチル=ピペリジン-1-カルボチオアート、S-(4-クロロベンジル)-N,N-ジエチルチオカルバメート、5-ターシャリーブチル-3-(2,4-ジクロル-5-イソプロポキシフェニル)-1,3,4-オキサジアゾリン-2-オン、2-[4-(2,4-ジクロロベンゾイル)-1,3-ジメチルピラゾール-5-イルオキシ]アセトフェノン、4-(2,4-ジクロロベンゾイル)-1,3-ジメチル-5-ピラゾリル-p-トルエンスルホネート、3-イソプロピル-2,1,3-ベンゾチアジアジノン-(4)-2,2-ジオキシドまたはそのナトリウム塩、2-クロロ-4-エチルアミノ-6-イソプロピルアミノ-s-トリアジン、2-メチルチオ-4-エチルアミノ-6-(1,2-ジメチルプロピルアミノ)-s-トリアジン、2-メチルチオ-4,6-ビス(エチルアミノ)-s-トリアジン、2-メチルチオ-4,6-ビス(イソプロピルアミノ)-s-トリアジン、1-( $\alpha$ , $\alpha$ -ジメチルベンジル)-3-(パラトリル)尿素、メチル= $\alpha$ -(4,6-ジメトキシピリミジン-2-イルカルバモイルスルファモイル)-o-トルアート、2-ベンゾチアゾール-2-イルオキシ-N-メチルアセトアニリド、1-(2-クロロイミダゾ[1,2-a]ピリジン-3-イルスルホニル)-3-(4,6-ジメトキシピリミジン-2-イル)尿素、S-ベンジル=1,2-ジメチルプロピル(エチル)チオカルバマート、2-クロロ-N-(3-メトキシ-2-テニル)-2',6'-ジメチルアセトアニリド等を挙げることができる。

更に、本発明における農薬としては植物が接触した後に、植物によって合成され、植物体内に蓄積する低分子の抗菌性物質であるファイトアレキシンを誘導する物質を挙げることができる。

微生物としては、病原微生物の繁殖抑制効果のあるものを用いる

ことができる。具体的にはトリコデルマ属（トリコデルマ・リグノールラム、トリコデルマ・ビイリディなど）、グリオクラディウム属（グリオクラディウム・ビレンスなど）、セファロスポリウム属、コニオシリウム属、スポリデスミウム属、ラエティサリア属などの糸状菌、アグロバクテリウム属（アグロバクテリウム・ラディオバクター）、バチルス属（バチルス・ズブチリス）、シュードモナス属（シュードモナス・セパシア、シュードモナス・グルメ、シュードモナス・グラディオオリ、シュードモナス・フロルエッセンス、シュードモナス・アウレオファシエンス、シュードモナス・プチダなど）、キサントモナス属、エルビニア属、アースロバクター属、コリネバクテリウム属、エンテロバクター属、アゾトバクター属、フラボバクテリウム属、ストレプトマイセス属（ストレプトマイセス・アクロモゲナス、ストレプトマイセス・ファエオパーピュレンス、ストレプトマイセス・ヒグロスコピカス、ストレプトマイセス・ニトロスポレンス、ストレプトマイセス・バーネンシスなど）、アクチノプラネス属、アルカリゲネス属、アモルフォスポランギウム属、セルロモナス属、マイクロモノスポラ属、パスチュリア属、ハフニア属、リゾビウム属、ブラディリゾビウム属、セラティア属、ラストニア属（ラストニア・ソラナセアラム）などの細菌および放線菌を挙げることができる。

これらの中で好ましく使用できるものは、抗菌活性物質産生菌である。具体的には抗菌物質生産能の高いシュードモナス属細菌であり、例えば抗生物質を生産する菌株としては抗生物質ピロールニトリン（対ダイコン苗立枯病菌）を生産するシュードモナス・セパシア、抗生物質フェナジンカルボン酸（対コムギ立枯病菌）やピロールニトリン、ピオルテオリン（対ワタ苗立枯病菌、キュウリ苗立枯病菌）、シアン化物（タバコ黒根病菌）、ディアセチルフログルシ

ノール（対コムギ立枯病菌）などを生産するシュードモナス フロルエッセンス、更には土壤中の鉄を病原菌に利用させず、植物にのみ利用できるようにする鉄キレート物質シデロフォア（シュードバクチン、蛍光性シデロフォア：ピオベルディン）などを生産する蛍光性シュードモナス属菌（シュードモナス・プチダ、シュードモナス・フロルエッセンスなど）を挙げることができる。

その他の微生物としては、バクテリオシンのアグロシン 84（対根頭がんしゅ病菌）を生産するアグロバクテリウム・ラディオバクターや植物ホルモンなどの生育増進物質を生産する生育増進性根圏細菌（PGPR）として蛍光性シュードモナス（シュードモナス・プチダ、シュードモナス・フロルエッセンスなど）やバチルス属などが挙げられる。

特にCDU分解菌群（シュードモナス属、アースロバクター属、コリネバクテリウム属、アグロバクテリウム属など）やストレプトマイセス属の菌株（例えば特公平5-26462号公報に開示の微生物研寄託第10533号）は土壌伝染性の病原性糸状菌に対し顕著な抑止力を有するため好ましく用いられる。

本発明に用いる生物活性物質を含有する粒子の組成は、1種以上の生物活性物質を含有していれば、特に限定されるものではない。生物活性物質単独で造粒されたものであってもよく、クレイ、カオリン、タルク、ベントナイト、炭酸カルシウムなどの担体や、ポリビニルアルコール、カルボキシメチルセルロースナトリウム、澱粉類などの結合剤を用いて造粒したものであっても構わない。また、必要に応じ、例えばポリオキシエチレンノニルフェニルエーテル等の界面活性剤や蔗糖蜜、動物油、植物油、水素添加油、脂肪酸、脂肪酸金属塩、パラフィン、ワックス、グリセリンなどを含有したものであっても構わない。

該粒子の造粒方法としては、押出し造粒法、流動層式造粒法、転動造粒法、圧縮造粒法、被覆造粒法、吸着造粒法等を用いることができる。本発明においては、これらの造粒法のいずれを使用しても良いが、押し出し造粒法が最も簡易である。

該粒子の粒径は特に限定されるものではないが、例えば、肥料の場合においては1.0～10.0mmであり、農薬の場合においては0.3～3.0mmであることが好ましい。これらは篩いを用いることにより、前記範囲内で任意の粒径を選択することができる。

該粒子の形状は特に限定されるものではないが、時限放出型の徐放機能を発現させるためには球状のものが好ましい。具体的には、粒子の円形度合いを知るための尺度である円形度係数を用いるとよく、式  $\{(4\pi \times \text{粒子の投影面積}) / (\text{粒子投影図の輪郭の長さ})^2\}$  によって求められた値が0.7以上のものが好ましく、より好ましくは0.75以上であり、更に好ましくは0.8以上である。円形度係数の最大値は1であり、1に近づくほど粒子は真円に近づき、粒子形状が真円から崩れるに従って円形度係数は小さくなる。

円形度係数が0.7を下回る芯材が増えると、これを用いて得られる時限放出型の徐放機能を有する被覆生物活性粒状物のd1における放出抑制が不十分となり、生物活性物質の洩れを生じやすくなる傾向にあるため、本発明に用いる粒子は、全てが0.7以上のものであることが好ましいが、本発明の効果を大きく損なわない限りにおいて、下限値未満のものが若干量存在していても差し支えない。なお上記の円形度係数は、PIAS-IV（株式会社ピアス製）等の市販の測定機器を用いることにより測定することができる。

本発明の被覆生物活性粒状物の被膜は、樹脂を含有するものや硫黄などの無機物質を含有するものであっても良い。

樹脂を含有する被膜において、樹脂の含有割合は被膜重量に対し、

10～100重量%の範囲であることが好ましく、より好ましくは、20～100重量%の範囲である。

また、無機物質を含有する被膜において、無機物質の含有割合は被膜重量に対し、20～100重量%の範囲であることが好ましく、より好ましくは、50～90重量%の範囲である。

被膜に使用する樹脂は特に限定されるものではなく、熱可塑性樹脂、熱硬化性樹脂、エマルジョン等を挙げることができる。

熱可塑性樹脂としては具体的に、オレフィン系重合体、塩化ビニリデン系重合体、ジエン系重合体、ワックス類、ポリエステル、石油樹脂、天然樹脂、油脂およびその変性物、ウレタン樹脂を挙げることができる。

オレフィン系重合体としては、ポリエチレン、ポリプロピレン、エチレンープロピレン共重合体、エチレンー酸化炭素共重合体、エチレンーヘキセン共重合体、エチレンーブタジエン共重合体、ポリブテン、ブテンーエチレン共重合体、ブテンープロピレン共重合体、ポリスチレン、エチレンー酢酸ビニル共重合体、エチレンー酢酸ビニルー酸化炭素共重合体、エチレンーアクリル酸共重合体、およびエチレンーメタアクリル酸エステル共重合体等が例示でき、塩化ビニリデン系重合体としては、塩化ビニリデンー塩化ビニル共重合体が例示できる。

ジエン系重合体としては、ブタジエン重合体、イソプレン重合体、クロロプレン重合体、ブタジエンースチレン共重合体、EPDM重合体、スチレンーイソプレン共重合体等が例示できる。

ワックス類としては、密ロウ、木ロウ、パラフィン等が例示でき、ポリエステルとしてはポリ乳酸、ポリカプロラクトン等の脂肪族ポリエステルやポリエチレンテレフタレートなどの芳香族ポリエステルが例示でき、天然樹脂としては、天然ゴム、ロジン等が例示でき、

油脂及びその変性物としては、硬化物、固形脂肪酸および金属塩等を例示することができる。

熱硬化性樹脂としては、フェノール樹脂、フラン樹脂、キシレン・ホルムアルデヒド樹脂、ケトンホルムアルデヒド樹脂、アミノ樹脂、アルキド樹脂、不飽和ポリエステル、エポキシ樹脂、ケイ素樹脂、ウレタン樹脂、および乾性油などを挙げる事ができる。

これらの熱硬化性樹脂は数多くのモノマーの組み合わせが有るが、本発明においては、モノマーの種類や組み合わせは限定されるものではない。また、モノマー同士の重合物の他に、2量体あるいはポリマー化したもの、またはその混合物の重合物であっても良い。また、種類の異なる複数の樹脂を配合したものであっても良い。

フェノール樹脂としては、フェノール、*o*-クレゾール、*m*-クレゾール、*p*-クレゾール、2,4-キシレノール、2,3-キシレノール、3,5-キシレノール、2,5-キシレノール、2,6-キシレノール、および3,4-キシレノールなどのフェノール類から選ばれた1種以上と、ホルムアルデヒドに代表されるアルデヒド類から選ばれた1種以上との縮合反応によって得られたものを使用することができる。

フラン樹脂の代表的なものとしてフェノール・フルフラール樹脂、フルフラール・アセトン樹脂、およびフルフリルアルコール樹脂などを挙げる事ができる。

キシレン・ホルムアルデヒド樹脂は、*o*-キシレン、*m*-キシレン、*p*-キシレン、およびエチルベンゼンなどのキシレン類から選ばれた1種以上と、ホルムアルデヒドに代表されるアルデヒド類から選ばれた1種以上との縮合反応によって得られたものを使用することができる。

ケトンホルムアルデヒド樹脂としては、アセトン・ホルムアルデヒド樹脂、シクロヘキサノン・ホルムアルデヒド樹脂、アセトフェノ

ン・ホルムアルデヒド樹脂、および高級脂肪族ケトン・ホルムアルデヒド樹脂などを挙げることができる。

アミノ樹脂としては、尿素、メラミン、チオ尿素、グアニジン、ジシアンジアミド、グアナミン類、およびアニリンなどのアミノ基含有モノマーから選ばれた1種以上と、ホルムアルデヒドとの縮合反応によって得られたものを挙げることができる。

アルキド樹脂は非転化型、転化型のどちらでもよく、グリセリン、ペンタエリスリトール、エチレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、プロピレングリコール、ソルビトール、マンニトール、およびトリメチロールプロパンなどの多価アルコールから選ばれた1種以上と、無水フタル酸、イソフタル酸、マレイン酸、フマル酸、セバシン酸、アジピン酸、クエン酸、酒石酸、リンゴ酸、ジフェン酸、1,8-ナフタリル酸、またテルペン油、ロジン、不飽和脂肪酸とマレイン酸の付加物などの多塩基酸から選ばれた1種以上とを縮合させて得られたものを挙げることができる。

また、アルキド樹脂を変性させる際に使用する脂肪油または脂肪酸としては、アマニ油、大豆油、エゴマ油、魚油、桐油、ヒマワリ油、クルミ油、オイチシカ油、ヒマシ油、脱水ヒマシ油、蒸留脂肪酸、綿実油、ヤシ油、およびそれらの脂肪酸、またはグリセリンとエステル交換したモノグリセリドを挙げることができる。このほかロジン、エステルロジン、コーパル、フェノールレジン等の樹脂変成物も使用することができる。

不飽和ポリエステルとしては、無水マレイン酸、フマル酸、イタコン酸、無水フタル酸、イソフタル酸、テレフタル酸、テトラヒドロ無水フタル酸、3,6-エンドメチレンテトラヒドロ無水フタル酸、アジピン酸、セバシン酸、テトラクロル無水フタル酸、および3,6-エンドジクロルメチレンテトラクロルフタル酸などの有機酸から選

ばれた1種以上と、エチレングリコール、ジエチレングリコール、1,2-プロピレングリコール、ジプロピレングリコール、水素化ビスフェノールA、2,2-ビス(4-オキシエトキシフェニル)プロパン、および2,2-ビス(4-オキシプロポキシフェニル)プロパンなどのポリオールから選ばれた1種以上とを縮合反応させて得られたものを挙げることができる。

更に、該不飽和ポリエステル硬化促進を目的として、スチレン、ビニルトルエン、ジアリルフタレート、メタクリル酸メチル、トリアリルシアヌル酸、およびトリアリルリン酸などのビニルモノマーから選ばれた1種以上とを縮合時に加えて得られたものも使用することができる。

エポキシ樹脂としては、ビスフェノールA型、ノボラック型、ビスフェノールF型、テトラビスフェノールA型、およびジフェノール酸型のエポキシ樹脂を挙げることができる。

さらに、ポリエステル樹脂をウレタン化したものなど、複合化した樹脂を使用することも可能である。

ウレタン樹脂としては、トリレンジイソシアナート、3,3'-ビトリレン-4,4'-ジイソシアナート、ジフェニルメタン-4,4'-ジイソシアナート、ポリメチレンポリフェニレンポリイソシアナート、3,3'-ジメチル-ジフェニルメタン-4,4'-ジイソシアナート、メタフェニレンジイソシアナート、トリフェニルメタントリイソシアナート、2,4-トリレンジイソシアナート、トリジンジイソシアナート、ヘキサメチレンジイソシアナート、イソホロンジイソシアナート、キシレンジイソシアナート、ジシクロヘキシルメタンジイソシアナート、水添キシレンジイソシアナート、およびナフタリン-1,5-ジイソシアナートなどのジイソシアナートから選ばれた1種以上と、ポリオキシプロピレンポリオール、ポリオキシエチレンポリオール、アクリ

ロニトリル-プロピレンオキシド重合体、スチレン-プロピレンオキシド重合体、ポリオキシテトラメチレングリコール、アジピン酸-エチレングリコール、アジピン酸-ブチレングリコール、アジピン酸-トリメチロールプロパン、グリセリン、ポリカプロラク톤ジオール、ポリカーボネートジオール、ポリブタジエンポリオール、およびポリアクリレートポリオールなどのポリオールから選ばれた1種以上とを、ポリ付加重合させることによって得られたものを挙げる事ができる。

長期にわたる徐放機能、更には時限放出型の徐放機能の達成には、粒子の表面を透湿性の低い樹脂で完全に被覆し、水分の透過を極僅かに抑えることができる被膜を形成させることが必要である。つまり、ピンホールや亀裂の無い被膜を形成することが重要である。特に、時限放出型の徐放機能において、長いd 1が必要な場合には、粒子の表面に透湿性の小さな被膜を形成させることが有効である。透湿性の小さい樹脂被膜を該粒子表面に被覆することにより、外部に存在する水分を徐々に時間をかけて生物活性物質を含有する粒子にまで浸透させることができる。

そのためには、熱可塑性樹脂を含有する被膜で該粒子を被覆することが有効であり、更に、熱可塑性樹脂としてオレフィン重合体、オレフィン共重合体、塩化ビニリデン重合体、塩化ビニリデン共重合体を用いることが有効である。

特にポリエチレン、ポリプロピレン、エチレン-プロピレン共重合体、エチレン-酸化炭素共重合体、エチレン-ヘキセン共重合体、エチレン-ブテン共重合体、プロピレン-ブテン共重合体及びこれらの混合物を最も好ましい被膜材料として挙げる事ができる。これらの被膜材料を用い、ピンホールや亀裂のない被膜が形成されれば、水分の透過量は極僅かとなる。

更に本発明においては、本発明の効果を損なわない範囲で、被膜にフィラーや親水性付与のための界面活性剤などを添加してもよい。フィラーとしてはタルク、クレー、カオリン、ベントナイト、硫黄、白雲母、金雲母、雲母状酸化鉄、金属酸化物、珪酸質、ガラス、アルカリ土類金属の炭酸塩、硫酸塩、および澱粉等を挙げることができ、界面活性剤としては、ポリオール脂肪酸エステルに代表されるノニオン界面活性剤を挙げることができる。

本発明における揮発物質とは、物質の蒸気圧が25℃で $1 \times 10^{-4}$  Pa以上の物質である。

被覆生物活性粒状物に含まれる揮発物質としては、樹脂重合時に使用した溶剤（*n*-ヘキサン等）、水、界面活性剤、未反応モノマー、重合度の低いプレポリマー、および被膜形成時に使用した溶剤などがある。

生物活性物質を含有する粒子の表面を被膜で被覆する方法は、特に限定されるものではなく、例えば、熔融させた被膜材料を該粒子表面に噴霧する方法、溶剤に被膜材料を溶解させた被膜材料溶解液を該粒子表面に噴霧する方法、被膜材料の粉体を該粒子表面に付着させ、その後熔融する方法、モノマーを該粒子表面に噴霧し、該粒子表面で反応させ樹脂化（被膜化）する方法、更に、被膜材料の溶解液ないし被膜材料溶解液に、該粒子を浸すディップ法などを挙げることができる。

本発明の被覆生物活性粒状物は、例えば1種以上の生物活性物質からなる粒子を予め製造し、該粒子の表面を被膜で被覆することによって得ることが出来る。

樹脂を含む被膜材料を該粒子に被覆する方法としては、該被膜材料中の樹脂を溶解し得る溶剤に溶解させた被膜材料溶解液を、噴霧により該粒子表面に付着させ、被膜を形成させる方法（以下「溶解

液噴霧法」と云う)、若しくは該被膜材料を加熱により溶融させて得られた被膜材料溶解液を、噴霧により該粒子表面に付着させ、被膜を形成させる方法(以下「溶解液噴霧法」と云う)を挙げることができる。

本発明の被覆生物活性粒状物は、どちらの方法で得られたものであっても構わないが、生産効率の高さや、得られる被膜の均一性などの面から、転動または流動状態にある該粒子に該被膜材料溶解液を噴霧により付着させ、その後に熱風に晒すことにより溶剤を蒸発させ被膜を形成させる方法が好ましい。

樹脂を含有する被膜にフィラーを分散させる場合において、良好に生物活性物質の溶出を制御するためには、フィラーが被膜内において均一に分散されていることが重要である。

本発明において、フィラーが被膜内に均一に分散されている状態とは、下記の方法で求めた変動係数が50%以下である場合を意味する。本発明において、該変動係数は好ましくは35%以下である。

該変動係数は、1粒子の被膜の切断面において、膜厚方向を縦、膜表面に対して平行方向を横とし、1粒子の被膜の切断面から任意に、縦×横=20 $\mu$ m×50 $\mu$ mの範囲を10箇所、走査型電子顕微鏡で観察し、各箇所毎に存在するフィラー数を計測し、その計測結果から求めた(該変動係数=標準偏差/平均値×100)ものである。

フィラーを均一に分散した被膜を得るためには、本発明の被覆生物活性粒状物を溶解液噴霧法で製造することが好ましい。

該溶解液噴霧法に使用し得る被覆装置の一例について、図1に示した噴流装置を参照しながら説明する。該方法においては、無機フィラー等の溶剤に不溶な被膜材料を、被膜材料溶解液中に均一に分散させるため、特に被膜材料溶解液の攪拌を強力に行う必要がある。

この噴流装置は、噴流状態にある粒子3に対し、被膜材溶解液を配管5経由で輸送、スプレーノズル2により噴霧し、粒子3の表面に吹き付けて、該表面を被覆すると同時並行的に、高温気体を噴流塔1に下部の熱風導入管4からガイド管6へ流入させ、該高速熱風流によって、該粒子表面に付着している被膜材溶解液中の溶剤を瞬時に蒸発乾燥させるものである。

噴霧時間は被膜材料溶解液の樹脂濃度、及び該溶液のスプレー速度、被覆率等により異なるが、これらは目的に応じて適宜選択されるべきものである。

図1に示した噴流装置以外の本発明に使用し得る被覆装置としては、流動層型または噴流層型の被覆装置として、特公昭42-24281号公報及び特公昭42-24282号公報に開示の、ガス体により粒子の噴水型流動層を形成せしめ、中心部に生ずる粒子分散層にコーティング剤を噴霧する装置を挙げることができ、回転型の被覆装置としては、特開平7-31914号公報及び特開平7-195007号公報に開示の、ドラムの回転によりドラム内周に具えたリフタによって粉粒体を上方に移送した後に落下させ、落下中の粉粒体表面にコーティング剤を塗布し、被膜を形成させる装置を挙げることができる。

溶解液噴霧法で本発明の被覆生物活性粒状物を得る場合、使用する溶剤は特に限定されるものではないが、被膜に用いる樹脂の種類毎に、各溶剤に対する溶解特性が異なることから、使用する樹脂に併せて溶剤を選択すればよい。

例えば、樹脂としてオレフィン重合体、オレフィン共重合体、塩化ビニリデン重合体、塩化ビニリデン共重合体などを用いる場合には、塩素系溶剤や炭化水素系溶剤が好ましく、その中でもテトラクロロエチレン、トリクロロエチレン、トルエンを用いた場合には、

緻密で均一な被膜が得られることから特に好ましい溶剤である。

本発明においては、被覆性物活性粒状物に含まれる揮発物質の該粒状物に対する濃度は500ppm以下であることが好ましい。500ppm以下であれば、被覆生物活性粒状物を長期保存した際の放出機能の経時変化を良好に抑えることができ、より好ましくは100ppm以下であり、更に好ましくは10ppm以下であり、特に好ましくは1ppm以下である。

時限放出型の徐放機能を有する被覆生物活性粒状物においては、揮発物質の該粒状物に対する濃度は10ppm以下であることが好ましく、さらに好ましくは1ppm以下で有ることが望ましい。

これら被覆生物活性粒状物に含まれる揮発物質の濃度は、例えば、ベンゼンやノルマルヘキサン等の溶媒を用いて抽出し、ガスクロマトグラフィ（例えばECD）等の公知の分析方法で測定することができる。

本発明の被覆生物活性粒状物を得るためには、被覆工程終了後、揮発物質を被覆生物活性粒状物から除去するための脱気の工程を設けることが有効である。脱気の方法は特に限定されないが、通熱風、赤外線照射、マイクロウェーブ等により、被膜が損傷しない程度に該粒状物を加熱する方法を挙げることができる。

本発明において、脱気は通熱風によるものであることが好ましく、具体的には、該粒状物に対し、揮発物質を含有していない、加熱された窒素や空気、水蒸気等のガスを吹き付ける処理を行えばよい。

揮発物質をほとんど含有していないガスで処理するためには、揮発物質をほとんど含有していないガスを入手し、該粒状物に吹き付けたガスを、脱気のための空間から速やかに排出すればよい。処理後のガスをそのまま循環させたり、該ガスが滞留するような構造の脱気（加熱）装置を用いた場合には、該粒状物における揮発物質の

濃度を本発明の範囲にするのに、長時間を要するほか、脱気処理時の温度や、脱気に用いるガスに含まれる揮発物質の濃度によっては、本発明の被覆生物活性粒状物が得られない場合がある。

該処理後のガスを循環再利用する場合は、該ガスを活性炭等を用いて揮発物質を分離精製したうえで再度使用すれば、前記弊害を緩和することができる。また、該ガスにおける揮発物質の濃度は、露点以下であることが好ましい。

また、脱気処理を行う際の、被覆生物活性粒状物の状態は、特に限定されるものではないが、流動若しくは転動状態にあることが好ましい。静置状態であっても脱気処理は可能であるが、揮発物質の濃度を本発明の範囲にするためには、長時間を要するほか、脱気時の温度や、脱気に用いるガスに含まれる揮発物質の濃度によっては、本発明の被覆生物活性粒状物が得られない場合がある。

更に、脱気処理の際に、ビーカーのような底深の容器に該粒状物を入れて脱気処理を行った場合、また特に、ガス化した際の揮発物質の比重が、脱気処理の際に使用するガスの比重よりも重い場合にも、本発明の被覆生物活性粒状物が得られない場合がある。

このときの脱気の温度は特に限定されるものではないが、被膜が熱可塑性樹脂を含有する場合には、被膜に含まれる熱可塑性樹脂の融点を $T^{\circ}\text{C}$ とした場合、 $(T - 60)^{\circ}\text{C}$ 以上 $(T - 5)^{\circ}\text{C}$ 未満であることが好ましい。被膜に含まれる熱可塑性樹脂が単一の場合は、該樹脂の融点を $T^{\circ}\text{C}$ とし、2種以上の場合は、それぞれの樹脂の融点を比較して高い方の樹脂の融点を $T^{\circ}\text{C}$ とする。但し、その温度条件下で脱気処理をしていて粒子同士が団粒化するなどの不都合が生じた場合には、融点が低い方の樹脂の融点以下で行うことが好ましい。樹脂の融点はDSC等公知の分析機器を用いて測定することができる。

脱気時間は被膜の厚さ、製造直後に被覆生物活性粒状物に含まれる揮発物質の濃度などにより一様ではないが、好ましくは0.05～2時間である。

本発明の被膜生物活性粒状物から脱気された揮発物質は、例えば冷却、圧縮や、活性炭等の吸着剤により回収することができる。従って、揮発物質は、廃棄物として排出されることなく、リサイクルすることにより被覆工程で再度使用できることから環境面、コスト面においても好ましい処理法であるといえる。

前述の脱気処理は、被覆生物活性粒状物を溶解液噴霧法で得た場合に特に有効である。それは、溶解液噴霧法においては、被膜材料溶解液を得る際に、多量の溶剤を用いることから、被覆工程終了後の該粒状物に含まれる揮発物質の濃度が、非常に高くなる傾向にあるからである。

本発明の被覆性物流状物は放出特性の経時変化がほとんどないため、製造直後の製品を直ちに品質検査に供試できる。このようにして得られた品質検査データは、速やかに製造部門へフィードバックすることができ、例えば、品質管理目標値からの偏差が生じ始めた場合、その対処を少ないロスタイムで行うことができるため、本発明の被覆生物活性粒状物は製造管理の面からも好ましい機能を有する。

#### 実施例

以下、実施例によって本発明を説明するが、本発明はこれら実施例により限定されるべきものではない。尚、以下の実施例における「%」は特に断りがない限り「重量%」である。

##### 1. 被覆生物活性粒状物の製造

##### 1) 被覆生物活性粒状物の製造A（被覆粒状物1～4の製造）

図1に示される噴流層被覆装置（塔径450mm、高さ4000

mm、空気噴出口径 70 mm、円錐角 50 度) を用い、生物活性粒状物として粒径 2.0 ~ 3.4 mm、円形度係数 0.8 の粒状尿素を、表 1 に記載の被膜材料で被覆率が 12% になるまで被覆し、被覆粒状物 1 ~ 4 を製造した。製造条件は以下の方法に準拠して行った。

また、被覆率は被覆粒状物の重量 (A) と被膜の重量 (B) との和を 100 重量%とした被覆粒状物に対する被膜の重量 (A) の比率であり、算式  $[B \times 100 / (A + B)]$  で求めた値である。

被膜材料溶解液は、被膜材料を表 1 に記載の割合で揮発物質に均一に溶解、分散させ、被膜材料溶解液に対する被膜材料の濃度を 1.0 重量%にした。

一流体ノズル：出口径 0.8 mm フルコーン型

粒状肥料：10 kg

熱風温度：100 ~ 110 °C

熱風風量：240 m<sup>3</sup> / hr

スプレー流速：0.5 kg / min

表 1

	被膜材料								揮発物質 蒸気圧[25℃]
	被膜材 1		被膜材 2		被膜材 3		被膜材 4		
被覆粒状物 1	PE	25	EVA	15	タルク	60	S A	0.5	テトラクロロエチレン (2,460Pa)
被覆粒状物 2	ECO	40	スターチ	6	タルク	54	-	-	トルエン (3,793Pa)
被覆粒状物 3	PE	39	PCL	1	タルク	60	-	-	テトラクロロエチレン (2,460Pa)
被覆粒状物 4	PP	40	スターチ	6	タルク	54	-	-	テトラクロロエチレン (2,460Pa)
被覆粒状物 5	PLA	50	-	-	タルク	50	-	-	トリクロロエチレン (9,902Pa)
被覆粒状物 6	PE	32	-	-	タルク	68	-	-	テトラクロロエチレン (2,460Pa)
被覆粒状物 7	PE	60	-	-	イオウ	40	-	-	テトラクロロエチレン (2,460Pa)

被膜材の数字は重量部を示す。

蒸気圧：「改訂第5版 化学工業便覧」丸善発行、1988年より

PE：低密度ポリエチレン (MFR = 23 g / 10 min [JIS K 6760]、密度： $d = 0.916 / \text{cm}^3$ 、融点 105℃)

EVA：エチレン-酢酸ビニル共重合体 (MI = 20、酢酸ビニル 30重量%)

タルク：平均粒径 5  $\mu\text{m}$

SA：ポリオキシエチレンノニルフェニルエーテル (HLB = 13)

ECO：エチレン-酸化炭素共重合体 (MFR = 0.75 g / 10 min、CO = 0.95重量%、 $d = 0.93 \text{ g} / \text{cm}^3$ 、融点 120℃)

PP：ポリプロピレン (MFR = 3 g / 10 min [JIS K 6758]、密度： $d = 0.90 \text{ g} / \text{cm}^3$ 、ビカット軟化点：145℃ [JIS K 6758])

スターチ：でんぷん、トウモロコシ（和光純薬工業）

PCL：ポリ-ε-カプロラクトン（ $M_n = 80,000$ 、融点  $60^\circ\text{C}$ ）

PLA：ポリ-L-乳酸（ $M_n = 60,000$ ）

イオウ：試薬品

## 2) 被覆生物活性粒状物の製造B（被覆粒状物5～7の製造）

図1に示される噴流層被覆装置（塔径250mm、高さ2000mm、空気噴出口径50mm、円錐角50度）を用い、生物活性粒状物として粒径1.4～1.7mm、円形度係数0.8の粒状農薬（ベントナイト60重量部、クレー25重量部、三共ダイアジノン水和剤34（九州三共、ダイアジノン34%）15重量部）を、表1に記載の被膜材料で被覆率が20%になるまで被覆し、被覆粒状物5～7を製造した。製造条件は以下の方法に準拠して行った。

また、被覆率は被覆粒状物の重量（a）と被膜の重量（b）との和を100重量%とした被覆粒状物に対する被膜の重量（b）の比率であり、算式  $[b \times 100 / (a + b)]$  にて求めた値である。

被膜材料溶解液は、被膜材料を表1に記載の割合で揮発物質に均一に溶解、分散させ、被膜材料溶解液に対する被膜材料の濃度を1.0重量%にした。

一流体ノズル：出口径0.4mmフルコーン型

粒状肥料：3kg

熱風温度：100～110℃

熱風風量：70m<sup>3</sup>/hr

スプレー流速：0.2kg/min

## 2. 揮発物質の脱気

被覆生物活性粒状物の製造A及びBで得られた被覆粒状物1～7を用いて、揮発物質の脱気処理を行った。供試ガスは、揮発物質（ト

リクロロエチレン、パークロロエチレン、トルエン) 濃度が 1 p p m 未満である空気を用いた。脱気処理時のガスの温度は表 2 に示した。得られた被覆粒状物 1 ~ 7 からそれぞれ 5 0 0 g を用いて図 2 の脱気装置で脱気処理を行った。被覆粒状物 1 ~ 7 を製造後、図 2 の脱気装置に該粒状物を投入し、熱風導入管を通して空気を装置内に入れ、3 0 分間通風することで脱気処理を行う。排気ガスは上方の開口部から連続的に排出され、溶剤回収装置で処理した後脱気処理用のガスとして再利用される。このようにして脱気処理することにより、実施例 1 ~ 7 を得た。一方、脱気処理を行わない被覆粒状物 1 ~ 7 を比較例 1 ~ 7 とした。

表 2

	供試粒子	被覆後脱気処理の 有無 (ガス温度)	被覆生物活性 粒状物中の 揮発物質濃度 (ppm)
実施例 1	被覆粒状物 1	あり (65℃)	5
実施例 2	被覆粒状物 2	あり (70℃)	3
実施例 3	被覆粒状物 3	あり (70℃)	2
実施例 4	被覆粒状物 4	あり (70℃)	5
実施例 5	被覆粒状物 5	あり (68℃)	23
実施例 6	被覆粒状物 6	あり (50℃)	355
実施例 7	被覆粒状物 7	あり (75℃)	8
比較例 1	被覆粒状物 1	なし	3000
比較例 2	被覆粒状物 2	なし	4500
比較例 3	被覆粒状物 3	なし	3600
比較例 4	被覆粒状物 4	なし	4200
比較例 5	被覆粒状物 5	なし	5500
比較例 6	被覆粒状物 6	なし	5200
比較例 7	被覆粒状物 7	なし	6700

### 3. 揮発物質濃度の測定

表 2 の実施例 1 ～ 7 と比較例 1 ～ 7 について、揮発物質の濃度測定を行った。比較例 1 ～ 7 については製造直後（被覆工程終了直後）、実施例 1 ～ 7 については揮発物質の脱気処理後に行った。

抽出する揮発物質がテトラクロロエチレン、トリクロロエチレンの場合には、抽出用溶媒としてベンゼンを用い、抽出する揮発物質がトルエンの場合には、ノルマルヘキサンを用い、実施例 1 ～ 7 及び比較例 1 ～ 7 のそれぞれ 0.5 g を、該抽出用溶媒 50 ml に 1 週間、常温で浸漬し、揮発物質を抽出させることによって分析試料

を調整した。

該分析試料をガスクロマトグラフィー（検出器：ECD（抽出用溶媒：ベンゼン）、FID（抽出用溶媒：ノルマルヘキサン））によって揮発物質を分析し揮発物質濃度を得た（表2）。

#### 4. 性能評価試験

性能評価試験は下記A及びBの方法で行い、比較例1～7は製造直後（被覆工程終了直後）、実施例1～7は揮発物質の脱気処理後のものを供試した。これとは別に、実施例1～7及び比較例1～7を、それぞれを100gずつ個々に厚さ0.063mmのポリエチレン製袋（商品名：リード冷凍保存するバッグ、ライオン㈱）に入れて封印して2週間冷暗所に保存後、前述と同様に性能評価試験に供試した。

##### 1) 性能評価試験A

実施例1～4及び比較例1～4のそれぞれ10gを200ml水中に浸漬して25℃に静置し、所定期間経過後被覆生物活性粒状物と水とに分け、水中に溶出した尿素を定量分析により求める。肥料には新水200mlを入れて再び25℃に静置し、所定期間経過後同様の操作を行う。このような動作を反復して水中に溶出した尿素の溶出累計と日数の関係をグラフ化して溶出速度曲線を作成し、グラフから溶出累計が10%に到達する日数（d1）を読みとった。その結果を表3に示した。

##### 2) 性能評価試験B

試験は、供試サンプルの被膜に亀裂が入り、被膜が破壊されることにより、内部の農薬粒子が外部に10%放出されるまでの時間を測定したものである。

水を1.5ml入れたキャップ付試験管（12mm×72mm）に、実施例5～7、比較例5～7をそれぞれ該試験管1本当たり1

粒投入しキャップをした。これを実施例 5 ～ 7、比較例 5 ～ 7 それぞれ 100 管（粒）用い、水温 20℃一定の条件下でそれぞれ被覆生物活性粒状物の崩壊の個数をカウントした。観察は試験開始から毎日行った。得られた結果から放出累計と日数の関係をグラフ化して放出速度曲線を作成し、グラフから溶出累計が 10% に到達する日数（d 1）を読みとった。その結果を表 3 に示した。

表 3

	性能評価試験	
	製造直後	製造 2 週間経過後
	d 1 (日)	d 1 (日)
実施例 1	8	9
実施例 2	4 0	3 9
実施例 3	1 9 9	2 0 3
実施例 4	5 2	5 2
実施例 5	1 0	1 0
実施例 6	3 0	3 2
実施例 7	9 8	9 5
比較例 1	4	7
比較例 2	2 2	3 1
比較例 3	1 3 3	1 6 0
比較例 4	3 0	4 1
比較例 5	3	6
比較例 6	4	1 3
比較例 7	3 0	6 5

d 1 : 1.0 % 溶出に要する日数 (日)

表 3 の結果からも明らかな様に、実施例 1 ~ 7 は 2 週間保存下後の放出機能における経時変化は極僅かであったのに対し、比較例 1 ~ 7 においては著しい経時変化が認められた。

本発明の被覆生物活性粒状物は以下の効果がある。

- (1) 保存中の放出機能の経時変化が少なく、安定した品質を保てる。
- (2) (1) により、製造後直ちに評価できるため、結果を速やかに製造に反映できる。

## 請 求 の 範 囲

1. 生物活性物質を含有する粒子の表面を、被膜で被覆した被覆生物活性粒状物であつて、該粒状物に含まれる揮発物質の該粒状物に対する濃度が500ppm以下である被覆生物活性粒状物。
2. 揮発物質の該粒状物に対する濃度が100ppm以下である請求項1に記載の被覆生物活性粒状物。
3. 揮発物質の該粒状物に対する濃度が10ppm以下である請求項1に記載の被覆生物活性粒状物。
4. 揮発物質の該粒状物に対する濃度が1ppm以下である請求項1に記載の被覆生物活性粒状物。
5. 被膜が樹脂を含有する被膜である請求項1～4の何れか一項に記載の被覆生物活性粒状物。
6. 被膜が樹脂とフィラーとを含有する被膜である請求項1～4の何れか一項に記載の被覆生物活性粒状物。
7. フィラーが被膜内に均一に分散されている請求項6に記載の被覆生物活性粒状物。
8. 樹脂が熱可塑性樹脂である請求項5～7の何れか1項に記載の被覆生物活性粒状物。
9. 熱可塑性樹脂がオレフィン重合体、およびオレフィン共重合体から選ばれた1種以上である請求項8に記載の被覆生物活性粒状物。
10. 熱可塑性樹脂がポリエチレン、ポリプロピレン、エチレンープロピレン共重合体、エチレンー酸化炭素共重合体、エチレンーヘキセン共重合体、エチレンーブテン共重合体、およびプロピレンーブテン共重合体から選ばれた1種以上である請求項8に記載の被覆生物活性粒状物。
11. 揮発物質が溶剤である請求項1～10の何れか1項に記載の被覆生物活性粒状物。

12. 溶剤が炭素系有機溶剤および塩素系有機溶剤から選ばれた1種以上である請求項11に記載の被覆生物活性粒状物。

13. 溶剤がトルエン、キシレン、テトラクロロエチレン、およびトリクロロエチレンから選ばれた1種以上である請求項11に記載の被覆生物活性粒状物。

14. 被覆生物活性粒状物が、溶剤に樹脂を溶解させた樹脂溶液を、生物活性物質を含有する粒子の表面に付着させるとともに、該樹脂溶液から溶剤を蒸発させることによって得られたものである請求項1～13の何れか1項に記載の被覆生物活性粒状物。

15. 生物活性物質が肥料である請求項1～14の何れか1項に記載の被覆生物活性粒状物。

16. 生物活性物質が農薬である請求項1～14の何れか1項に記載の被覆生物活性粒状物。

図 1

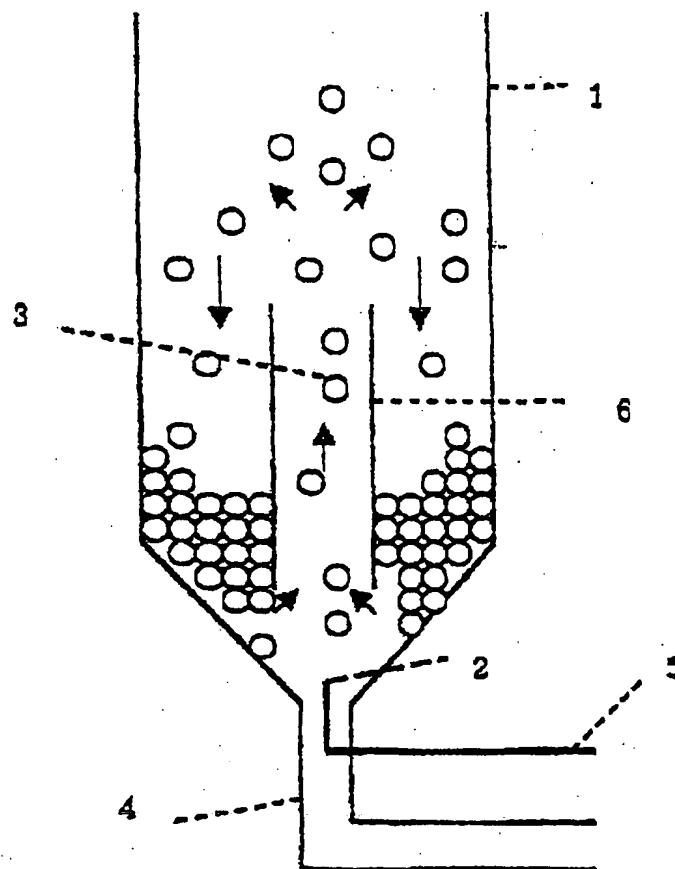


図 2

